

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-228604

(43)公開日 平成6年(1994)8月16日

(51)IntCl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 FI 技術表示箇所
B 2 2 F 1/02 D
B 0 1 J 13/04
13/02

6345-4G B 0 1 J 13/ 02 A
6345-4G L

審査請求 未請求 請求項の数4 FD (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平5-40678

(22)出願日 平成5年(1993)2月5日

(71)出願人 000227250

日鉄鉱業株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目3番2号

(72)発明者 新子 貴史

三鷹市下連雀8丁目10番16号 日鉄鉱業株式会社研究開発センター内

(72)発明者 奥寺 浩樹

三鷹市下連雀8丁目10番16号 日鉄鉱業株式会社研究開発センター内

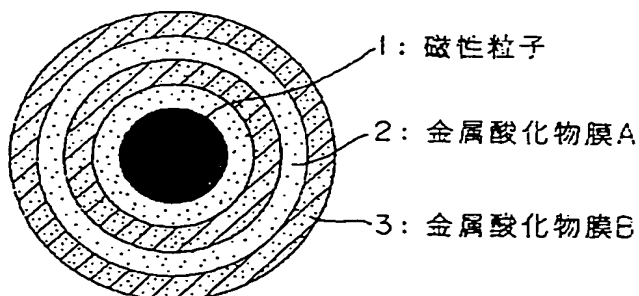
(74)代理人 弁理士 萩野 平 (外3名)

(54)【発明の名称】 表面に金属酸化物膜を有する金属又は金属化合物粉体

(57)【要約】

【目的】 表面に金属酸化物膜を有する粉体において、複数の性質を有して複合した機能を果たし得るものを得ること、及びそのために厚くかつその厚さが均一である金属酸化物膜を形成し得る方法を提供すること。

【構成】 金属又は金属化合物粉体の表面に、均一な0.01~20 μ mの厚みの、前記金属又は金属化合物を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を1層あるいは複数層有する粉体。金属アルコキシド溶液中に金属又は金属化合物粉体を分散し、該金属アルコキシドを加水分解して該粉体の表面に金属酸化物膜を形成し、複数層に被覆する時はこの操作を繰り返し、得た金属酸化物膜被覆粉体を乾燥させて、表面上に1層あるいは複数層の金属酸化物膜を有する粉体を得る粉体の製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属又は金属化合物粉体の表面に、均一な0.01～20 μ mの厚みの、前記金属又は前記金属化合物を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を有することを特徴とする粉体。

【請求項2】 金属粉体の表面に、1層当たり均一な0.01～20 μ mの厚みの、前記金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を1層又は複数層有することを特徴とする粉体。

【請求項3】 金属化合物粉体の表面に、均一な0.01～20 μ mの厚みの、前記金属化合物を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を複数層有することを特徴とする粉体。

【請求項4】 金属アルコキシド溶液中に金属又は金属化合物粉体を分散し、該金属アルコキシドを加水分解することにより該金属又は金属化合物粉体の表面において金属酸化物を生成させて該金属酸化物の膜を形成させることを特徴とする金属又は金属化合物粉体表面に金属酸化物膜を有する粉体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、表面に厚い金属酸化物膜を1層或いは複数層有する金属又は金属化合物粉体に関するものであり、特に金属又は金属化合物粉体の表面に厚い異種の金属酸化物膜を有することにより、複合した性質を持って複合した機能を果たしうるようにした新しい金属又は金属化合物粉体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、金属の素材或いは製品は、綺麗に磨かれたものであっても、空気中ではその表面は酸化されて薄いその金属の酸化物膜により覆われていることは、良く知られていることである。また、物品の表面を保護するためとか、物品の表面に薄膜を形成するための被覆技術として、塗着法、沈着法、陽極酸化法、スパッタリング、真空蒸着法等の多くの種類の手段が知られているが、塗着法等は膜の厚さが厚いものが得られるものの、膜の厚さが不均一であり、かつ密着性が劣り、また陽極酸化法、スパッタリング、真空蒸着法等は膜の密着性が良く、ある程度均一な組成のものが得られるものの、膜としては薄いものしか得られないという欠点がある。陽極酸化法では基体がアルミニウムの場合、酸化アルミニウム層が形成されるが、その組織は緻密でない。

【0003】しかし、このような被覆技術は物品が或る程度の大きさを有するものであるときには容易に行い得るが、被覆対象の物品が粉末である場合には、殆どがその手段をそのまま適用することが出来ないものであって、ある程度の附加手段を講じて、粉体に対して均一な厚さを有する膜を形成することは困難であった。金属粉体において、その粉体表面にその金属の酸化物の膜を形成することは、その金属粉体を酸化雰囲気

その金属粉体表面の金属が酸化されて、表面上に自然に薄いその酸化物膜が生成されるということから、困難なことではないが、金属が酸化され易いものであるとか、或いは粉体の粒径が小さいときには反応が早く、酸化が一気に進んで発火してしまうので、この手段を採用することができない。酸化の程度を制御して酸化物膜を形成するようにしても、その膜は薄いもので実用に適しない。液中で金属粉体の表面を酸化剤により酸化する方法も、不均一系であるために酸化剤との接触が平均して行うことができず、このため均一な厚さの金属酸化物膜を形成することは困難であった。

【0004】さらに、その金属粉体上にその金属とは種類の異なる金属の酸化物の膜を均一に形成することは一層困難である。金属粉体表面に表面処理の目的で酸化ケイ素や酸化チタンを非常に薄くコーティングする技術はあるが、均一な厚さで膜厚を厚くすることは困難であった。沈着法や塗着法は、金属物体に対して厚い皮膜を形成することができるが、これらの方法を金属粉体に対して適用するときには、金属粉体を分散状態に維持しなければならないため、被覆された金属粉体の外に被覆物だけの粒子（粉体）が形成し易く、それらの混合物が形成されることになる。このため、金属粉体表面に異種の金属酸化物を厚くコーティングし、かつコーティングすべき金属酸化物の単独微粒子を作らない方法は今までなかった。

【0005】また、粉体が金属化合物からなる場合においても、その粉体に他の金属の酸化物の膜を形成することは種々問題があって、困難である。例えば、金属塩水溶液から金属化合物を粉体上に沈着させ、その沈着物を加熱して前記金属酸化物に変化させる方法を採用するときには、前記水溶液が基体の金属化合物中に含浸して、沈殿反応のさいに金属化合物、例えば金属酸化物中に異種の金属酸化物が前記反応により混入した状態が生成し、所期の目的物が得られないことになる危険性がある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】種々の技術分野における進歩に伴い、特異な性質を備えた金属粉体或いは金属化合物粉体を求める要望が増しており、金属粉体又は金属化合物粉体だけが備える性質の外に別の性質を合わせ持ち、複合した機能を有する金属又は金属化合物粉体が求められている。例えば、カラー磁性トナーの原料磁性粉体では、従来の黒い磁性トナーでは問題とならなかった磁性金属粉体の色がそのままでは使用できないことになる。また、半導体の封止材の充填物として使用する放熱物質においては、熱伝導性の良い金属粉体だけでは使用できず、電気絶縁性であることが必要となるから、その金属粉体はその表面に十分な電気絶縁性のある膜を備えたものでなければならない。従来知られている粉体の保護のためとか、粉体が合成樹脂などとの混合を容易に

するためなどで表面を改質するために、粉体の表面に薄い金属酸化物の膜を形成する手段によったものでは、このような分野の新しい要求に耐えられるものではない。この点から、従来の粉体にはない新しい構成の粉体を提供することが必要である。

【0007】本発明の目的は、このような新しい要求に答えられる複合した性質を有し、複合した機能を果たし得る金属又は金属化合物粉体を提供しようとするにある。本発明の他の目的は、表面に金属酸化物膜を有する金属又は金属化合物粉体を提供すること、特に電子写真法複写機などに使用されるカラー磁性トナー用の原料磁性粉体、或いは電気絶縁性を有する熱伝導性粉体を提供することにある。さらに、本発明の目的は、このような複合した性質を有し、複合した機能を果たし得る金属又は金属化合物粉体を製造することができる新しい製造方法を提供しようとするにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記の目的を達成するため、上記の条件を満たすことができる粉体を製造する手段を種々検討した結果、金属又は金属化合物粉体を金属アルコキシド溶液中に分散し、該金属アルコキシドを加水分解するときには、該粉体上に厚くかつ均一な金属酸化物膜を形成することができ、それによって従来得ることができなかった厚くかつその厚さが均一である金属酸化物膜を有する金属又は金属化合物粉体を得ることができることを見出し、それを基礎として本発明に到達した。

【0009】本発明の上記目的は、下記的手段により達成される。

(1) 金属又は金属化合物粉体の表面に、均一な0.01~20 μ mの厚みの、前記金属又は前記金属化合物を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を有することを特徴とする粉体。

(2) 金属粉体の表面に、1層当たり均一な0.01~20 μ mの厚みの、前記金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を1層又は複数層有することを特徴とする粉体。

(3) 金属化合物粉体の表面に、均一な0.01~20 μ mの厚みの、前記金属化合物を構成する金属とは異種の金属を成分とする金属酸化物膜を複数層有することを特徴とする粉体。

(4) 金属アルコキシド溶液中に金属又は金属化合物粉体を分散し、該金属アルコキシドを加水分解することにより該金属又は金属化合物粉体の表面において金属酸化物を生成させて該金属酸化物の膜を形成させることを特徴とする金属又は金属化合物粉体表面に金属酸化物膜を有する粉体の製造方法。

【0010】本発明において、その金属酸化物膜を形成させる対象となる粉体において、その基体が金属の場合、鉄、ニッケル、クロム、チタン、アルミニウム等、

どのような金属でもよいが、その磁性を利用するものにおいては、鉄等磁性を帯びるものが好ましい。これらの金属は合金でも良く、前記の磁性を有するものであるときには、強磁性合金を使用することが好ましい。また、その粉体の基体が金属化合物の場合には、その代表的なものとして前記した金属の酸化物が挙げられるが、例えば、鉄、ニッケル、クロム、チタン、アルミニウム、ケイ素、等の外、カルシウム、マグネシウム、バリウム等の酸化物、あるいはこれらの複合酸化物でも良い。さらに、金属酸化物以外の金属化合物としては、金属窒化物、金属炭化物等を挙げることができ、具体的には鉄窒化物等が好ましい。これらの粉体の表面に形成させる金属酸化物膜は、その金属酸化物を構成する金属が粉体の金属又は金属化合物の成分である金属と異なるものを用いる。これは、例えば粉体が金属酸化物の場合、同一の金属酸化物膜を形成しても性質の異なった膜を形成することにならないので、あまり技術的な利益がない。これらの粉体は、粒径については特に限定するものでないが、0.01 μ m~数mmの範囲のものが好ましい。

【0011】この金属酸化物膜を構成する金属酸化物としては、例えば、鉄、ニッケル、クロム、チタン、亜鉛、アルミニウム、カドミウム、ジルコニウム、ケイ素等の外、カルシウム、マグネシウム、バリウム等の酸化物を用いることができる。この金属酸化物の種類は、その粉体の表面に付与しようとする性質に応じてそれに適するものが選択される。金属酸化物膜は、1層だけではなく、複数層設けることができる。2層以上設ける場合には、各層とも0.01~20 μ mの厚みとする。2層以上設ける場合、芯体となる粉体の表面に異種の金属酸化物の膜を形成した後、その上に前記膜の金属酸化物と同じ、又は異なる金属酸化物の膜を順次形成するようにして作ることができる。粉体が金属酸化物である場合には、金属酸化物膜を2層以上設けることが好ましい。

【0012】金属酸化物膜を生成するに際しては、その金属酸化物の成分である金属のアルコキシドの溶液中に金属又は金属化合物粉体を分散し、金属アルコキシドを加水分解することにより、前記粉体の表面にその金属の酸化物を生成させる。この加水分解による金属酸化物の生成方法は、いわゆるゾルーゲル法と呼ばれ、微細で均一な組成の酸化物が形成されるが、この方法を粉体に適用することにより、均一な厚さでしかも厚い膜が得られことがわかった。金属アルコキシドは、亜鉛、アルミニウム、カドミウム、チタン、ジルコニウム、ケイ素等、必要とする金属酸化物に対応する金属のアルコキシドが選択される。磁性トナー用の磁性粉体を作成するには、表面の金属酸化物としてチタン、ケイ素の酸化物を形成させる例が多く、この場合はケイ素又はチタンのアルコキシドが使用される。

【0013】金属アルコキシドは、水により分解するため、有機溶媒の溶液として使用される。有機溶媒は、ア

10

20

30

40

50

ルコール、例えばエタノール、メタノール等、ケトン類等が使用される。有機溶媒は、脱水したものを使用することが好ましい。金属アルコキシド溶液の濃度は、溶解する金属アルコキシドの種類や有機溶媒の種類によって変わるが、最適な条件を設定する。金属アルコキシド溶液の濃度と金属アルコキシド溶液の粉体に対する使用量により、粉体上の金属酸化物膜の厚さが決まる。

【0014】この金属アルコキシド溶液に金属又は金属化合物粉体を分散し、それに水を加えて金属アルコキシドを加水分解して金属酸化物を生成させると共に、それを前記粉体上に析出させて、金属酸化物膜を生成させる。この金属酸化物膜が生成した粉体は、溶液から取り出し、乾燥すると、強固な金属酸化物膜が得られる。この金属酸化物膜の生成を具体的にいうに当たっては、前記粉体を脱水したアルコール中に分散させ、充分攪拌しながら金属アルコキシド溶液を加えて混合し、この均一混合物に徐々にアルコールと水の混合液を添加して、金属アルコキシドを加水分解し、粉体表面上に金属酸化物を析出させる。単層被覆の場合は被処理粉体表面に被覆された金属酸化物膜を乾燥することにより被覆粉体が得られる。乾燥は真空乾燥することが好ましい。複数層の被覆粉体を製造するには、金属酸化物層を生成する反応工程を繰り返し、最後に乾燥を行えばよい。

【0015】金属アルコキシドの加水分解においては、まず金属酸化物のゾルが生成し、その後ゲル化するが、加水分解反応後、暫くおくとゲル化が進行し、場合によっては乾燥によりゲル化が完了する。その反応において、粉体の表面に前記のゾルが生成するため、連続した膜が形成され、それにより容易に厚さが均一で、組成も均一であり、強固な金属酸化物膜が形成されるものと考えられる。このような性質を有する金属酸化物膜は従来の沈着法等によっては得られないものである。前記加水分解反応においては、水の量が多いと、反応速度が早く、微細な金属酸化物粒子が形成され易いが、反応を緩やかにするためアルカノールアミン類などを添加することができる。また、前記反応を促進するため、酸類、アミン類などの触媒を使用することもできる。この粉体の製造方法においては、単に金属粉体の表面を酸化して得る金属酸化物膜とは違った優れた性質の金属酸化物膜が得られるので、金属又は金属化合物粉体の表面に、前記金属又は金属化合物を構成する金属と同一の金属を成分とする金属酸化物の膜を形成する場合にも有用であるので、このような金属酸化物膜を有する金属又は金属化合物粉体の製造する場合にも適用されるものであって、本発明に包含されるものである。

【0016】このようにして製造した、表面に金属酸化物膜を有する金属又は金属化合物粉体は、それを構成すべく選択した粉体の金属又は金属化合物の材質、及び表面の膜の金属酸化物の材質により、種々の性質を合わせ持つので、それぞれの用途に用いることができる。例え

ば、粉体として磁性体の金属鉄、四三酸化鉄などを用い、その上の膜の金属酸化物として屈折率のより低い酸化ケイ素を用い、その外膜としてより屈折率の高い酸化チタンを用い、白色度の高い磁性粉が得られ、粉体として銀又は銅を用い、その上の膜の金属酸化物として酸化アルミニウムを用い、電気絶縁性の表面層を有する熱伝導性粉体が得られる。

【0017】さらに、前記粉体の表面上に形成する金属酸化物膜を複数層とする場合などにおいて、前記膜の各層の厚さを調整することにより特別の機能を与えることができる。例えば、物体の表面に、屈折率の異なる被覆膜を、光の4分の1波長に相当する厚さずつ設けると、光は全て反射されるので（フレネル反射を利用したもの）、この作用を利用し、例えば鉄、コバルト、ニッケルなどの金属粉末あるいは金属の合金粉末、あるいは窒化鉄の粉末などの磁性体を芯の粒子とし、この表面に可視光の4分の1波長（95～195nm）の厚さの酸化ケイ素層を設けることにより、磁性体の粉末の色を隠蔽し、さらに外側に厚さが可視光の4分の1波長（95～195nm）の長さで、その厚さが均一である酸化チタン層を被覆することを1度あるいはそれ以上繰り返すことにより、光を全反射して白色に輝いた磁性トナー用磁性粉体を製造することができる。その粉体の上に着色層を設け、さらにその上に樹脂層を設ければ、カラー磁性トナーを製造することができる。なお、可視光の波長は幅があるので、酸化ケイ素層と酸化チタン層は厚さが前記の4分の1波長の範囲に入るが、異なるようにしたものを交互に複数設けてもよい。図1は、そのような粉体粒子を断面図により説明するものであって、磁性粒子1を芯とし、その表面上に2の金属酸化物膜Aと3の金属酸化物膜Bがそれぞれ複数設けられている。

【0018】上記のようにして得られた磁性トナーの利用方法について概略説明する。例えば、ポリエステルフィルムの上に金属蒸着層を設けて導電層とし、その上にアクリル樹脂などのバインダー中に例えば酸化亜鉛のような光導電性半導体の微粒子、光増感色素、色増感剤や分散助剤などを分散し、塗布して形成した光導電層を設けた感光体を用意する。上記感光体上に均一にコロナ帯電を与え、複写すべき画像からの反射光を上記帯電感光体に照射すると感光体上に原画像のポジ荷電像が形成される。このポジ荷電像を紙のような支持体に転写し、この支持体に磁気トナー等で形成された磁気ブラシから本発明の上記ポジ荷電像と反対に荷電した磁性トナーを付着させ、付着しない部分の磁性トナーを除くと、感光体上に原画像に対応する磁性トナー像が得られる。この磁性トナー像を焼き付けると、紙上に複写画像が得られる。紙が白色であって、本発明の粉体を原料として着色された磁性トナーがカラーであった場合には従来にない新規な複写画像となる。

【0019】

【実施例】上記、本発明の単層および複数層の金属酸化膜被覆粉体及びその製造方法を実施例により説明する。ただし、本発明は以下の実施例だけに限定されるものではない。

実施例1

・脱水エタノール：使用する脱水エタノールは、通常の脱水エタノールをモレキュラーシーブ3A1/8で1昼夜以上脱水した後、Arガスで置換したグローブボックス内でろ過し、栓付きのガラス瓶に入れて保存する。

・スラリー1：100gのBASF社製カルボニル金属鉄粉（平均粒径1.8 μ m）を高速攪拌機の付いたガラス容器に入れ、これに上記脱水エタノールを300mlを加え、高速攪拌機で十分に攪拌し、スラリー1とする。

【0020】・溶液1：Arガスで置換したグローブボックス内で、栓付きのガラス瓶に上記脱水エタノールを300mlとオルトケイ酸テトラエチルを33g秤取り、混合し、密栓して溶液1とする。

・スラリー2：溶液1の容器をグローブボックスから取り出し、スラリー1の入った容器中に溶液1を一気に注入し、十分高速攪拌し、スラリー2とする。

・溶液2：脱水エタノールを200mlに純水2.7gを加えた溶液。

【0021】スラリー2中の被覆処理される粉体が沈殿しない程度に攪拌しながら、溶液2をビュレットを用いて1時間かけて滴下して、徐々に加水分解を行わせる。滴下後、生じたスラリー（スラリー3）を8時間程度攪拌する。攪拌後、スラリー3を遠心分離機にかけ、上澄みを取り除き、固形分1を得る。この固形分1を真空乾燥して試料1を得た。この試料1は、酸化ケイ素被覆鉄粉である。得られた試料1の酸化ケイ素（SiO₂）の含有量は6.3%であった。従って酸化ケイ素の膜厚は0.18 μ mと計算される。さらに得られた酸化ケイ素被覆鉄粉を脱水エタノール300mlに投入し、十分攪拌し分散させる。これに予め用意したオルトチタン酸テトラエチル42gと脱水エタノール300mlの混合溶液を加え、さらに攪拌を続けスラリー4とする。このスラリー4を攪拌しながら、これにビュレットであらかじめ用意した純水3.3gと脱水エタノール200mlの混合溶液を1時間かけ滴下する。滴下後攪拌を8時間続けた後、遠心分離機で固液分離し、沈殿物を乾燥し試料2を得た。試料2の酸化チタン（TiO₂）の含有量は11.1%であった。したがって、酸化チタンの膜厚は0.16 μ mと計算される。

【0022】実施例2

窒化鉄粉100g（平均粒径0.8 μ m：自社製）を実施例1と同様に脱水エタノール300ml中に高速攪拌機で入れて充分攪拌しスラリー5とする。このスラリー5に、脱水エタノール300mlに対しオルトケイ酸テトラエチル105gを混合して得た溶液を加えて攪拌

混合後、これに脱水エタノール300mlに対し純水8.6gを加えて得た溶液を1時間かけて滴下、混合する。滴下終了後、攪拌を10時間続け、静置した後、固液分離を行い、さらに真空乾燥して試料3を得た。この試料3の酸化ケイ素含有量は24.4%であり、これから酸化ケイ素の膜厚は0.11 μ mと計算される。次に、試料3を脱水エタノール300ml中に分散し、スラリー6とする。このスラリー6に、脱水エタノール300mlに対しオルトチタン酸テトラエチル163gを混合して得た混合溶液を加えて分散させ、これに脱水エタノール300mlに対し純水12.8gを加えて得た溶液を1時間かけて滴下、混合する。滴下終了後、10時間攪拌を続け、静置した後、固液分離を行い、さらに真空乾燥して試料4を得た。この試料4の酸化チタン含有量は31.3%であり、これから酸化チタンの膜厚は0.10 μ mと計算される。

【0023】実施例3

アトマイズ金属銅粉600g（平均粒径6.0 μ m）を実施例1と同様に脱水エタノール300ml中に入れ、高速攪拌機で充分攪拌し、スラリー7とする。このスラリー7に、脱水エタノール300mlに対しオルトチタン酸テトラエチル83gを混合して得た溶液を一気に投入して加え、充分高速攪拌混合後、これに脱水エタノール200mlに対し純水6.5gを加えて得た溶液を1時間かけて滴下、混合する。滴下終了後、攪拌を8時間続け、静置した後、固液分離を行い、さらに真空乾燥して試料5を得た。得られた試料5の平均粒径は6.4 μ mであった。試料5の酸化チタン含有量は2.2%であり、これから酸化チタンの膜厚は0.3 μ mと計算される。

【0024】

【発明の効果】本発明により、複数の性質を合わせ持ち、複合した機能を果たし得る金属又は金属化合物粉体を得ることができる。そして、この粉体は従来得られていない厚い金属酸化物膜を表面に有するので、その金属酸化物膜が持つ性質を十分にかつ有効に利用することができる。さらにその金属酸化物膜を複数層設けることにより、特異な性質を与えることができ、例えば極めて厚い着色層を設けることなく、白色の粉体を得ることができる。また、その金属酸化物膜は、厚さが均一でかつ結合が強固であるので、剥離しがたく、有用な表面層を構成することができる。具体的用途として、白色の磁性トナー用磁性粉体や、電気絶縁性を備えた熱伝導性粉体などが得られ、後者は半導体の封止材用樹脂に用いられる充填材料あるいは電子部品の絶縁放熱を目的とした放熱シートなどに用いられる。

【図面の簡単な説明】

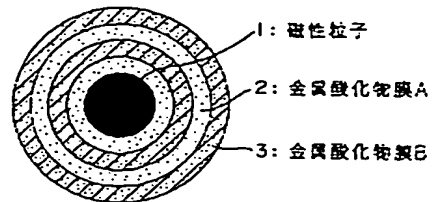
【図1】本発明のカラー磁性トナー用磁性粉体粒子の断面図。

【符号の説明】

- 1 磁性粒子
2 金属酸化物膜A

- 3 金属酸化物膜B

【図1】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁵
G 0 3 G 9/083

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

G 0 3 G 9/08

3 0 1 . .